



(19) RU⁽¹¹⁾ 2 122 247⁽¹³⁾ C1
(51) МПК⁶ G 21 C 21/00

РОССИЙСКОЕ АГЕНТСТВО
ПО ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

(21), (22) Заявка: 97109713/25, 10.06.1997

(46) Дата публикации: 20.11.1998

(56) Ссылки: Мохова В.А. и др. Усовершенствование методов изготовления уран-плутониевого топлива. - Атомная техника за рубежом. - 1983, N 2, с.16 - 18. US 3504058, А, 1970. US 4457879, А, 1984. RU 2069393, С1, 1996.

(71) Заявитель:
Государственный научный центр Российской Федерации "Всероссийский научно-исследовательский институт неорганических материалов им.акад.А.А.Бочвара"

(72) Изобретатель: Меньшикова Т.С.,
Родин В.М., Астафьев В.А., Антипов С.А., Гущин К.И.

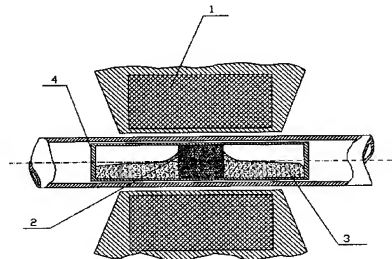
(73) Патентообладатель:
Государственный научный центр Российской Федерации "Всероссийский научно-исследовательский институт неорганических материалов им.акад.А.А.Бочвара"

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ГОМОГЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ИЗ СМЕСИ ДИОКСИДОВ УРАНА И ПЛУТОНИЯ

(57) Реферат:

Изобретение относится к области атомной техники и может быть использовано для получения гомогенного ядерного топлива из смеси диоксидов урана и плутония, более конкретно к технологии изготовления МОХ-топлива (уран-плутониевого диоксидного топлива) для ядерных реакторов на быстрых и тепловых нейтронах, и может быть использовано при изготовлении таблеток для твэлов с содержанием плутония 1-40 мас%. Способ позволяет обеспечить одно из основных требований к сердечнику твэлов из МОХ-топлива - получение гомогенной структуры сердечника из диоксидов урана и плутония, что обеспечивает достаточно полное растворение при регенерации топлива в азотной кислоте, важное при регенерации замкнутого топливного цикла. Образованию твердого раствора компонентов, например, (U, Pu)O₂ способствует получение мелкодисперсной смеси компонентов, интенсивно перемешиваемых вихревым слоем, который возникает при хаотическом движении магнитных игл в переменном электромагнитном поле. Установлена

необходимая геометрия магнитных игл: отношение длины к диаметру 8-14, величина загрузки магнитных игл равна не более половины величины критической загрузки, а допустимый объем компонентов в рабочем объеме (стакане) составляет 50-70%. Материал игл и стакана подобран так, чтобы не происходило загрязнения топлива нежелательными примесями. 2 з.п. ф-лы, 2 ил.



Фиг.1



(19) **RU** ⁽¹¹⁾ **2 122 247** ⁽¹³⁾ **C1**
(51) Int. Cl. ⁶ **G 21 C 21/00**

RUSSIAN AGENCY
FOR PATENTS AND TRADEMARKS

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21), (22) Application: 97109713/25, 10.06.1997

(46) Date of publication: 20.11.1998

(71) Applicant:
Gosudarstvennyy nauchnyy tsentr Rossijskoj
Federatsii "Vserossijskij
nauchno-issledovatel'skij institut
neorganicheskikh materialov
im.akad.A.A.Bochvara"

(72) Inventor: Men'shikova T.S.,
Rodin V.M., Astaf'ev V.A., Antipov S.A., Gushchin
K.I.

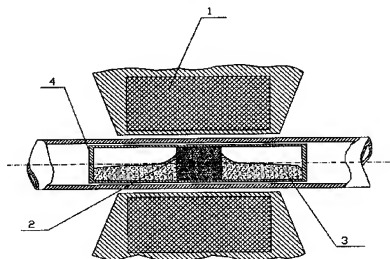
(73) Proprietor:
Gosudarstvennyy nauchnyy tsentr Rossijskoj
Federatsii "Vserossijskij
nauchno-issledovatel'skij institut
neorganicheskikh materialov
im.akad.A.A.Bochvara"

(54) METHOD FOR PRODUCING HOMOGENEOUS NUCLEAR FUEL FROM MIXTURE OF URANIUM AND PLUTONIUM DIOXIDES

(57) Abstract:

FIELD: nuclear power engineering; production of fuel for fast and thermal reactors. SUBSTANCE: method for producing fuel for fast and thermal reactors as well as pellets for fuel elements with plutonium content of 1 to 40 mass percent involves generation of homogeneous core structure from uranium and plutonium dioxides to ensure complete dissolving when fuel is regenerated in nitric acid essential in regenerating closed fuel cycle. Solid solution of components, for example (U,Pu)O₂, is produced to obtain finely dispersed mixture of components intensively stirred by vortex layer arising during random motion of magnetic needles in ac electromagnetic field. Desired geometry of magnetic needles is chosen so that their length- to-diameter ratio is 8-14, their loading value is not higher than half the critical loading value, and permissible volume of components in

working shell is 50-70. Material of needles and shell is chosen so that fuel contamination with unwanted impurities is eliminated. EFFECT: improved quality of nuclear fuel. 3 cl, 2 dwg



Фиг.1

Изобретение относится к области атомной техники, а более конкретно к технологии изготовления МОХ-топлива (уран-плутониевого диоксидного топлива) для ядерных реакторов на быстрых и тепловых нейтронах при содержании плутония от 1 до 40 мас.%. Может быть использовано в производстве изготовления сердечников тепловыделяющих элементов активных зон АЭС.

Технология изготовления таблеток из порошков хорошо известна и состоит из операции подготовки пресс-порошка, его прессования в виде таблеток на пресс-автоматах и последующего спекания в восстановительной атмосфере при высокой 1700-1800°C температуре.

Важным этапом при изготовлении двух- и более компонентных систем является операция подготовки однородного пресс-порошка. Операция смешивания компонентов является ключевой, от нее зависят многие характеристики готовой таблетки, в первую очередь, однородность, плотность, величина зерна и микроструктура.

Известен способ получения таблеток МОХ-топлива, состоящий из подготовки пресс-порошка, смешивания диоксидов, прессования и спекания, при котором с целью более равномерного распределения компонентов в пресс-порошке проводят измельчение и смешивание в шаровой мельнице [1,2,3].

Однако достичь равномерного распределения компонентов в пресс-порошке не удается и в структуре спеченных таблеток наблюдается наличие двух фаз. Такие таблетки не растворяются полностью в азотной кислоте, что осложняет реализацию замкнутого топливного цикла. Для устранения этого недостатка создают новые технологические процессы, обеспечивающие получение гомогенного топлива.

Наиболее близким техническим решением к заявленному является способ получения гомогенного ядерного топлива из смеси диоксидов урана и плутония для изготовления таблеток, включающий подготовку пресс-порошка, смешивание компонентов, прессование и спекание таблеток. Смешивание производят в шаровой мельнице, длительность этой операции составляет 4-20 часов [4] - прототип.

Известный способ имеет следующие недостатки. Длительное смешивание приводит к повышенному износу мелющих тел и стенок смесителей и загрязнению пресс-порошка железом, никелем и др. примесями. Для исключения этого вводят дополнительную операцию магнитной сепарации. Кроме того, длительные процессы связаны с дополнительными затратами электроэнергии.

Основной технической задачей настоящего изобретения является повышение производительности процесса за счет сокращения длительности операции смешивания при подготовке пресс-порошка с обеспечением достаточной дисперсности и равномерности перемешивания компонентов по всему объему порошка, что обеспечивает при дальнейшем спекании взаимную диффузию компонентов с образованием гомогенного ядерного топлива, а также уменьшение загрязнения пресс-порошка

примесями.

Поставленная задача достигается тем, что согласно способу, включающему подготовку пресс-порошка путем смешивания диоксидов, прессования и последующего спекания, используется интенсивное перемешивание компонентов в вихревом слое. Вихревой слой создается за счет хаотического вращения магнитных игл в переменном электромагнитном поле, которые, увлекая с собой частицы порошка диоксидов, одновременно не только перемешивают порошки, но и измельчают их, уплотняют и активизируют поверхность частиц порошка. Смешивание порошков производят в рабочем объеме смесителя, в который помещают магнитные иглы. Рабочий объем смесителя заполняют на 50-70% смесью диоксидов урана и плутония при соотношении длины игл к их диаметру, равному 8-14. Величину загрузки магнитных игл устанавливают не более половины величины критической загрузки.

Сопоставительный анализ заявляемого технического решения с прототипом показывает, что заявляемый способ отличается от известного и позволяет установить соответствие заявляемого изобретения требованиям критерия "новизна".

Предлагаемый способ получения гомогенного ядерного топлива из смеси диоксидов урана и плутония реализован следующим образом.

Был разработан способ смешивания порошков в вихревом слое с использованием автоматического вихревого смесителя АВС-150. Принцип действия смесителя поясняется схемой, представленной на фиг. 1. В обмотке смесителя (1) возбуждается переменное электромагнитное поле, воздействующее на рабочие магнитные элементы (иглы) (2). Они под воздействием переменного магнитного поля совершают сложные колебательно-вращательные движения в узкой рабочей зоне.

Способ осуществляется следующим образом.

Обрабатываемый материал (3) - порошки диоксидов урана и плутония - помещают в рабочий объем смесителя - немагнитный стакан (4) из титана вместе с магнитными иглами. Так как рабочая зона имеет небольшую протяженность, то стакану придают возвратно-поступательное движение, амплитуду которого подбирают так, чтобы весь объем стакана проходил через рабочую зону.

Практическим путем получен ряд эмпирических зависимостей, позволяющих правильно и эффективно вести процесс перемешивания.

Важен размер игл и величина их загрузки в стакан. От их геометрии (отношения длины к диаметру, l/d) зависит, что будет протекать в вихревом слое - диспергирование или перемешивание. Рекомендуется соблюдать отношение $l/d = 8-14$. Величина загрузки игл также играет существенную роль. Если она мала - перемешивание мало эффективно, при большой загрузке возможно образование неподвижных зон из слипшихся между собой магнитных игл и полное отсутствие перемешивания. Это состояние называется критическим ($K_{кр.}$), величина которого зависит также от геометрических факторов

(1/d).

Экспериментально было установлено минимальное натирание железа в зависимости от величины загрузки магнитных игл, от числа циклов перемешивания и материала игл.

В результате были выбраны магнитные иглы из подшипниковой стали ШХ-15 диаметром 1,6 мм и длиной 17,8 мм (1/d = 11). Они обеспечили минимум натирания железа во время перемешивания. Расчет величины загрузки игл и величины загрузки перемешиваемых компонентов проводили с учетом физических свойств UO_2 и PuO_2 . Величина критической загрузки игл рассчитывается по формуле

$$m_{кр} = K_{кр} \cdot V_{р.з} \cdot \rho_{и},$$

где

$m_{кр}$ - масса критической загрузки;

$K_{кр}$ - коэффициент критичности, который

для соотношения 1/d = 11 равен 0,1;

l - длина магнитных игл;

d - диаметр магнитных игл;

$V_{р.з.}$ - объем рабочей зоны (стакана) (0,4 dm^3);

$\rho_{и}$ - плотность магнитных игл ($\approx 7,5 \text{ г/см}^3$).

Критическая загрузка магнитных игл оказалась равной 300 г.

Для качественного перемешивания следует использовать не более половины критической загрузки, то есть 100-150 г.

Заполняли порошок не более 50-70% объема стакана. При рабочей длине стакана, равной 340 мм, и диаметре 130 мм этот объем составил 4,5 л или с учетом насыщенного веса перемешиваемых диоксидов урана и плутония вес загрузки возможен до 4,5 кг смеси при насыщенном весе 2 $г/см^3$. Для оптимального перемешивания скорость перемешивания стакана составила 6 м/мин. Время перемешивания с одновременным измельчением порошков составила - 6-10 минут.

Для работы с радиоактивными порошками смеситель был автоматизирован и помещен в защитный бокс. В качестве рабочего объема смесителя изготовлен герметичный стакан из немагнитного материала, во избежание натирания железа использован титан.

Высокое качество перемешивания подтверждено гомогенной структурой спеченных таблеток по совокупности результатов металлографического, автордиографического анализов и исследований на сканирующем микроскопе. Сравнительные результаты с применением различных смесителей представлены на фиг. 2, из которого видно, что гомогенная структура топлива обеспечивает только при подготовке пресс-порошка, смешиваемого в смесителе типа ABC-150 по предлагаемому способу.

Таким образом, заявляемый способ позволяет получить качественный активированный пресс-порошок из однородной двух-, и более компонентной смеси ядерного топлива, например, UO_2 , PuO_2 , стеарат цинка. Из полученной смеси прессуют таблетки, которые подвергают спеканию. Это обеспечивает получение таблеток с гомогенной структурой твердого раствора, например, $(U, Pu)O_2$, растворимого при регенерации ядерного топлива на 99,9%.

Использование предлагаемого способа получения гомогенного ядерного МОХ-топлива обеспечивает по сравнению со способом прототипа новый технический результат:

1. Резко сокращает (до 150 раз) длительность процесса смешивания, то есть существенно увеличивает производительность операции смешивания.

2. Создает равномерное распределение дисперсных частиц порошков в микрообъемах. Это способствует в дальнейшем взаимной диффузии диоксидов урана и плутония при спекании с образованием гомогенного топлива, например $(U, Pu)O_2$ при содержании плутония от 1 до 40 мас. %.

3. Сокращает затраты электроэнергии и улучшает экологическую обстановку при изготовлении ядерного топлива.

4. Устраняет загрязнение пресс-порошка нежелательными примесями.

Источники информации

1. Реленак Х., Шнейдер В., Виттман К. На пути к усовершенствованному производству смешанного оксидного топлива. Ат. техн. за рубежом. - 1987, N 10, с. 27.

2. Kleykamp H. In: Second Meeting "Characterisation and Quality Control of Nuclear Fuel". Karlsruhe, 2-5 June 1981, Preprint IAEA-CN-42/379.

3. Мохова В. А. Промышленное производство и опыт эксплуатации $(U, Pu)O_2$ -топлива в реакторах LWRM. ЦНИИАтоминформ. - 1991, выпуск 20, с. 26 и 27.

4. Мохова В. А. Семеновская И.В. Смирнов Ю.В., Соколова И.Д. Усовершенствование методов изготовления уран-плутониевого топлива. Ат. техн. за рубежом. - 1983, N 2, с. 16-18.

Формула изобретения:

1. Способ получения гомогенного ядерного топлива из смеси диоксидов урана и плутония с содержанием плутония 1 - 40 мас. % для изготовления таблеток твзлов, включающий подготовку пресс-порошка путем смешивания компонентов, прессования и последующего спекания таблеток, отличающийся тем, что смешивание компонентов производят в рабочем объеме смесителя, в который помещают магнитные иглы и возбуждают в обмотке электромагнитного смесителя переменное магнитное поле, приводящее в движение иглы, образующие вихревой слой, обеспечивающий смешивание и измельчение компонентов, при этом рабочий объем смесителя заполняют на 50 - 70% смесью диоксидов урана и плутония, а отношение длины магнитных игл к их диаметру задают равным 8 - 14, кроме того, величину загрузки магнитных игл устанавливают равной не более половины величины критической загрузки.

2. Способ по п.1, отличающийся тем, что величину критической загрузки магнитных игл определяют по формуле

$$m_{кр} = K_{кр} \cdot V_{р.з} \cdot \rho_{и},$$

где $m_{кр}$ - масса критической загрузки;

$K_{кр}$ - коэффициент критичности, который определяется из соотношения 1/d = 8 - 14;

l - длина магнитных игл;

d - диаметр магнитных игл;

$V_{р.з.}$ - объем рабочей зоны - стакана;

ρ_m - плотность магнитных игл.
3. Способ по п.1, отличающийся тем, что магнитные иглы изготавливают из подшипниковой стали ШХ-15, рабочий объем смесителя выполняют из немагнитного

материала - титана, при этом возвратно-поступательное перемещение рабочего объема смесителя осуществляют со скоростью 6 - 8 м/мин, а смешивание компонентов производят в течение 6 - 10 мин.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

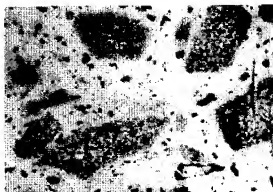
55

60

-5-

RU 2 1 2 2 2 4 7 C 1

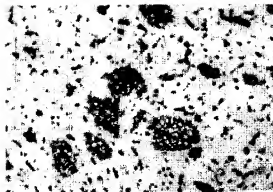
RU 2 1 2 2 2 4 7 C 1



x340

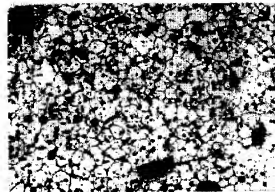
смешивание порошков в шаровых мельницах

Время 10 часов



x340

Время 20 часов



x340

смешивание и
диспергирование
в смесителе типа ABC-150
Время 6 минут

Фиг.2

RU 2 1 2 2 2 4 7 C 1

RU 2 1 2 2 2 4 7 C 1